

Title	Study on photoluminescence quantum yields of atomically thin-layered two-dimensional semiconductors transition metal dichalcogenides(Abstract_要旨)
Author(s)	Nur, Baizura Binti Mohamed
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2018-07-23
URL	https://doi.org/10.14989/doctor.k21315
Right	学位規則第9条第2項により要約公開; 許諾条件により本文は2020-07-01に公開; Long radiative lifetimes of excitons in monolayer transition-metal dichalcogenides MX ₂ (M = Mo, W; X = S, Se). N. B. Mohamed, H. E. Lim, F. Wang, S. Koirala, S. Mouri, K. Shinokita, Y. Miyauchi, and K. Matsuda. <i>Apl. Phys. Exp.</i> 11 (2017) , 015201, http://iopscience.iop.org/article/10.7567/APEX.11.015201/meta , Evaluation of photoluminescence quantum yield of monolayer WSe ₂ using reference dye of 3-borylbithiophene derivative. N. Baizura Mohamed, F. Wang, H. En Lim, W. Zhang, S. Koirala, S. Mouri, Y. Miyauchi, and K. Matsuda, <i>Phys. Status. Solidi. B</i> 254, (2017) 1600563., https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/pssb.201600563
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	ETD

(続紙 1)

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	Nur Baizura Binti Mohamed
論文題目	Study on photoluminescence quantum yields of atomically thin-layered two-dimensional semiconductors transition metal dichalcogenides (二次元原子層半導体遷移金属ダイカルコゲナイドにおける発光量子効率に関する研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文では、二次元原子層半導体における発光の量子効率を通して、その特異な電子状態と光学特性を研究した結果をまとめたものであり、6章から構成されている。</p> <p>第1章は序論で、本研究の背景とこれまでに行われた関連する研究について解説し、本論文の目的と意義について述べている。第2章では本研究を理解する上で基礎となる半導体の電子状態と光学遷移について説明し、さらに二次元原子層物質であるグラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイド (MX_2; $\text{M}=\text{Mo}, \text{W}, \text{Re}, \text{X}=\text{S}, \text{Se}$) の電子状態、光・伝導特性について述べている。</p> <p>第3章では、二次元原子層物質の発光量子効率を測定する新しい方法を提案している。これまで、原子層物質のような基板上の微小サンプルにおいて、発光量子効率を正確に測定することは技術的に困難であった。そこで本論文では、相対法と絶対法と呼ばれる発光量子効率測定の方法の組み合わせた方法を新たに適用した。さらに、相対法において一般的に用いられる参照色素 (ローダミン 6G) では固体状態において著しく発光量子効率が低下するため、固体においても高い発光量子効率を示す色素 (3-borylbithiophene derivative) を用いるなどにより、技術的な困難を克服し、高い精度で原子層物質の発光量子効率を測定する事を可能とした。本研究で確立した発光量子効率測定法を用い、室温において単層遷移金属ダイカルコゲナイドの一つである二セレン化タングステン (WSe_2) の発光量子効率が約 0.6%であることを明らかにした。</p> <p>第4章では、この発光効率測定の手法を二硫化レニウム (ReS_2) に適用した事例について述べている。これまでにその電子状態については、間接遷移、直接遷移であるかなど、第一原理計算の結果から様々な議論がなされているが、統一的な見解が得られていない。そこで、電子状態の影響を大きく受ける発光量子効率を通して、それを実験的に明らかにする事を試みた。実際に、単層から7層 ReS_2 の発光量子効率を測定したところ、その値が約 0.03%と非常に低くかつその値が層数によらないことがわかった。この結果は、これまで多くの議論がなされているにもかかわらず十分理解されていない、二硫化レニウムの電子状態に関する重要な知見を与え、その層数によらず間接遷移半導体であることを示している。</p> <p>第5章では、単原子層物質 MX_2 ($\text{M}=\text{Mo}, \text{W}, \text{X}=\text{S}, \text{Se}$) において、発光量子効率と発光寿命から、光励起状態である励起子の有効輻射緩和寿命を導いた。その一例として、単層二セレン化タングステンでは、上記で求めた発光量子効率 (0.6%) と発光寿命 (500ps) から、室温での輻射寿命は約 60ns であることがわかった。また、他の単原子層物質 MX_2 においても、共通して数 10ns と比較的長く、これは有限温度でのフォノン散乱等による大きな波数の励起子の存在、有限の励起子コヒーレンス長 (面積)、スピンに起因するダーク励起子の寄与によること</p>			

がわかった。特に、実験で得られた室温での励起子輻射寿命は理論的に予想されている値に比べ1桁以上長く、これはクーロン相互作用のみ考慮された低温極限の励起子輻射寿命が、現実の系では長くなっているためであると考えられる。

第6章では、本論文の総括と結論を記述している。さらに本論文で得られた知見を基に、これらの二次元原子層半導体の省エネルギー発光デバイス応用などに向けた指針を提示している。

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

本論文では、二次元原子層半導体における発光の量子効率を通して、特異な電子状態と光学特性を研究した結果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

まず、これまで困難であった二次元原子層物質の発光量子効率を測定する新しい方法を確立した。具体的には、1)相対法と絶対法と呼ばれる発光量子効率測定の方法の組み合わせること、2)固体でも高い発光量子効率を示すリファレンスを用いること、などにより高い精度で原子層物質の発光量子効率を測定する事を可能とした。実際に本研究で確立した手法を用い、単層遷移金属ダイカルコゲナイドである二セレン化タングステン (WSe_2) において、室温での発光量子効率が約 0.6%であることを明らかにした。

次に、この手法を他の原子層物質である二硫化レニウム (ReS_2) に適用した。ここでは、単層から数層 ReS_2 の発光量子効率を測定し、その値が約 0.03%であり、かつその値が層数によらずほぼ一定であることを示した。この結果は、これまで多くの議論がなされているにもかかわらず十分理解されていない、 ReS_2 の電子状態に関する重要な知見を与え、その層数によらず間接遷移半導体である事を示している。

さらに発光量子効率と発光寿命から、原子層物質における光励起状態の内因性の寿命である、輻射緩和寿命を知ることができる。単原子層物質 MX_2 ($\text{M}=\text{Mo}, \text{W}, \text{X}=\text{S}, \text{Se}$) において、発光量子効率と発光寿命から励起子の輻射緩和寿命を導いた。その一例として、単層二セレン化タングステン (WSe_2) では上記で求めた発光量子効率 (0.6%) と発光寿命 (500ps) から、室温での輻射寿命は約 60ns であることがわかった。また、他の単原子層物質 MX_2 においても、共通して数 10ns と比較的長い。これは、有限温度でのフォノン散乱等による大きな波数の励起子の存在、有限の励起子コヒーレンス長 (面積)、スピンの起因するダーク励起子の寄与によることがわかった。

これらの研究成果は、原子層半導体における新しい評価手法の確立と特異な光学的性質の解明という基礎科学への貢献と合わせて、省エネルギーに寄与しうる高機能な発光デバイスに向けた指針を示している。よって、本論文は博士 (エネルギー科学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 30 年 5 月 21 日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規程第 14 条第 2 項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。

論文内容の要旨、審査の結果の要旨及び学位論文の全文は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。ただし、特許申請、雑誌掲載等の関係により、要旨を学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日：平成 年 月 日以降